

p 62

日本国特許庁
JAPAN PATENT OFFICE

jc978 U.S. PTO
09/873312
06/05/01

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されて
いる事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed
with this Office

出願年月日

Date of Application:

2000年 6月 6日

出願番号

Application Number:

特願2000-168638

出願人

Applicant(s):

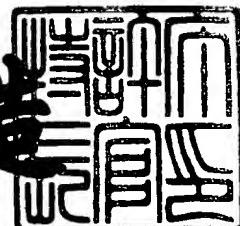
日本原子力研究所

CERTIFIED COPY OF
PRIORITY DOCUMENT

2001年 4月20日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

及川耕造



【書類名】 特許願
【整理番号】 001187
【特記事項】 特許法第30条第1項の規定の適用を受けようとする特許出願
【提出日】 平成12年 6月 6日
【あて先】 特許庁長官 殿
【国際特許分類】 G01T 1/16
【発明者】
【住所又は居所】 茨城県那珂郡東海村白方字白根2番地の4 日本原子力研究所東海研究所内
【氏名】 大島 真澄
【発明者】
【住所又は居所】 茨城県那珂郡東海村白方字白根2番地の4 日本原子力研究所東海研究所内
【氏名】 初川 雄一
【発明者】
【住所又は居所】 茨城県那珂郡東海村白方字白根2番地の4 日本原子力研究所東海研究所内
【氏名】 早川 岳人
【発明者】
【住所又は居所】 茨城県那珂郡東海村白方字白根2番地の4 日本原子力研究所東海研究所内
【氏名】 藤 暢輔
【発明者】
【住所又は居所】 茨城県那珂郡東海村白方字白根2番地の4 日本原子力研究所東海研究所内
【氏名】 篠原 伸夫
【特許出願人】
【識別番号】 000004097

【氏名又は名称】 日本原子力研究所

【代理人】

【識別番号】 100089705

【住所又は居所】 東京都千代田区大手町二丁目2番1号 新大手町ビル2
06区 ユアサハラ法律特許事務所

【弁理士】

【氏名又は名称】 社本 一夫

【電話番号】 03-3270-6641

【選任した代理人】

【識別番号】 100071124

【弁理士】

【氏名又は名称】 今井 庄亮

【選任した代理人】

【識別番号】 100076691

【弁理士】

【氏名又は名称】 増井 忠式

【選任した代理人】

【識別番号】 100075236

【弁理士】

【氏名又は名称】 栗田 忠彦

【選任した代理人】

【識別番号】 100075270

【弁理士】

【氏名又は名称】 小林 泰

【選任した代理人】

【識別番号】 100092015

【弁理士】

【氏名又は名称】 桜井 周矩

【先の出願に基づく優先権主張】

【出願番号】 平成11年特許願第353052号

【出願日】 平成11年12月13日

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 051806

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9706383

【ブルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 多重ガンマ線検出による高感度核種分析方法

【特許請求の範囲】

【請求項1】 多重ガンマ線検出法と放射化分析法を組合わせることにより、中性子その他の粒子線或いはガンマ線により放射化された試料中の核種から発生するガンマ線対（ペア）を多重ガンマ線検出装置により測定して試料中の核種を分析する方法。

【請求項2】 放射化された試料中の核種から同時発生するガンマ線対を多重ガンマ線検出装置で同時に測定して2次元マトリックスを作成することにより、試料中の核種を分離することなく各核種を分離して測定することを特徴とする請求項1記載の方法。

【請求項3】 複数のガンマ線検出器からなる多重ガンマ線検出装置を用いて試料中に存在する多数の放射性核種から発せられる複数の同時発生ガンマ線を測定し、各核種からのガンマ線対のエネルギー情報をコンピューターに記録し、これを解析して縦軸及び横軸をガンマ線エネルギーとした2次元マトリックスを作成し、このマトリックス上に形成された位置から各核種を特定し、その各ピークを予めエネルギーとその強度の判っている標準線源と比較して試料中の核種の含有量を測定することにより、各核種の定性、定量分析を行うことを特徴とする多重ガンマ線検出により放射性核種を分析する方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、多重ガンマ線検出法を放射性核種又は中性子その他の粒子線或いはガンマ線により放射化された試料中の核種の定性、定量に利用したものであって

、その核種から放出される多重ガンマ線を同時測定して、各核種からのガンマ線対（ペア）の情報を取ることにより、従来のガンマ線測定よりも高分解能で分析するものである。

【0002】

即ち、本発明は、放射性核種から放出される複数の同時発生ガンマ線を複数のガンマ線検出検出器からなる多重ガンマ線検出装置により同時計数測定して得られる2次元マトリクスを解析する方法であり、これにより複数核種の完全分離と同時分析が可能になった。

【0003】

即ち、従来の分析法では約1000分の1の分解能が得られるが、本発明の新しい2次元マトリクスを解析する法では更に1000分の1である百万分の1の分解能が達成される。これより、いかに多くの核種を含む試料であろうとも核種の完全分離が可能になる。現実にはあり得ないことがあるが、これまでに存在が知られている最大2000-3000の核種が、加速器・原子炉で同時に作られた場合でも、各々が平均10本程度のガンマ線を出すので、ガンマ線の総数は最大1万本のオーダーであるが、2次元マトリクス解析法における上記百万分の1の分解能では、これらを同時に定量することが可能になる。

【0004】

【従来の技術】

従来行われてきた放射能分析は、放射性核種から発せられるガンマ線を、1台のゲルマニウム半導体検出器により測定して得られる一次元のエネルギースペクトルから、エネルギーや半減期の情報に基づいて核種の同定を行っている。このゲルマニウム検出器の分解能は、1MeVで約1000分の1である。放射性核種は平均して10本オーダーのガンマ線を放出するので、少ない核種を含む試料では問題ないが、数十核種を含む試料ではガンマ線の本数は数百本に達し、これらをすべて分離することは不可能になる。特に、弱いガンマ線は他の強いガンマ線に邪魔されて観測することはできない。

【0005】

また、同様にして、放射性でない試料を加速器や原子炉からの粒子によって放射化し、その試料から発せられるガンマ線を検出し、その強度を測定する事により試料の定性、定量分析を行う事もできる。そこで、中性子放射化分析法は、試料に原子炉からの中性子を照射して放射化し、これを単一の高分解能ゲルマニウム検出器で測定し、得られた一次元スペクトル中のピークを解析し定量を行う方

法である。

【0006】

このような分析は従来より様々な方法により多くの分野で行われており、その中でも上記放射能分析は広く用いられている。特に1960年代にゲルマニウム半導体検出器が開発されてからは、高い分解能で検出できるガンマ線を用いた放射化分析が発達し、環境試料、生体試料、宇宙地球科学的試料など様々な試料中の微量元素の含有量測定が可能となった。

【0007】

しかし、従来の検出法においては、図1に示されるように、原子炉からの熱中性子照射による放射化試料1から発生したガンマ線を单一のゲルマニウム検出器2で測定し、縦軸をカウント（強さ）、横軸をガンマ線エネルギーとした1次元スペクトル3を作成する。この方法では、試料が多元素を含む場合には複雑なスペクトルになり、求める元素の分離測定は困難な場合があった。

【0008】

【発明が解決しようとする課題】

従来の方法では、混在する他の核種からの妨害を受け易い。運よく他のガンマ線と重ならなかった場合でも、多核種の場合ではスペクトル中のバックグラウンドが高くなり、弱いガンマ線を検出することは困難になる。

【0009】

よって、使用済み核燃料等の多くの核種を含む試料では妨害となる核種の影響を取り除くために、一般的には化学分離を行う、あるいは核種の半減期によって振り分けるなどの方法が取られる。しかしながら、化学分離には一般的に特殊な技術と手間が必要であるばかりでなく、化学分離の収率を求める必要があり、この操作中に誤差が入り込む可能性がある。又、半減期によって振り分ける方法とは、例えば半減期の長い核種を定量するためにかなりの時間を要し、又その間検出器系を維持する手間も大変である。

【0010】

これら従来の手法では混在する他の核種からの妨害を受けやすいので、環境試料のように多くの元素が混在している試料では妨害となる核種の影響を取除くた

めに化学分離等を行う必要があり、それに伴い化学分離の収率を求めるために再放射化などの操作を行わなければならないが、化学分離を行う事により多くの技術と手間が必要であり、またこの操作中に誤差が入り込む可能性がある。

【0011】

また、原子炉から中性子を照射し放射化した試料を、単一のゲルマニウム検出器で測定して得られた一次元スペクトル中のピークを解析し定量してきたが、多くの元素を含む試料の場合には生成放射能の相対強度は一部の核種に偏り、微量元素の同定は困難であり、化学分離を併用する事が多く、分離後の回収率の誤差などが最終結果に影響を与えるばかりでなく、化学分析の技術が必要である。

【0012】

更に、上記中性子放射化分析法でも、一般的に生成放射能の相対強度は一部の核種に偏り、多くの微量元素を同時に分析することは困難であることが多い。例えば生体試料では²⁴Na、⁵⁶Mn、⁴²K、⁸²Br、また地質学的試料では²⁴Na、⁵⁶Mn、⁴²K、⁴⁶Sc、⁵⁹Feなどの放射能が強いため、単一の検出器による一次元スペクトルを解析する方法では、他の短寿命核種のピークがこれらに隠れて検出されない。そのため、化学分離により強い放射核種を除いた後に放射線測定を行うなどの必要がある。しかしこのためには化学分析の技術が必要なだけでなく、化学分離を行った後に原子炉において再放射化を行い、目的核種の回収率を求めなくてはならない。さらに化学分離の操作を経る事により分析の精度に影響を与える事も懸念される。

【0013】

【課題を解決するための手段】

本発明は、多くの放射性核種が複数のガンマ線を放出している事に着目して、これらを複数のガンマ線検出器からなる多重ガンマ線検出装置により測定して得られる2次元マトリクスを解析することにより、これらの核種を定性、定量する方法を考案した。この方法により、従来の1次元のスペクトルに比べ1000倍のエネルギー分解能を得ることができた。

【0014】

本発明の2次元マトリクス法は、試料中の放射性核種から同時に発生した複数

のガンマ線を多重ガンマ線検出装置の2台以上の検出器で検出し、得られた2個のガンマ線エネルギーを縦軸と横軸とする2次元マトリクス上に加算し、そのピークを検出する方法であり、1次元スペクトルのバックグラウンドが2次元平面上で局在するために、ほとんどの領域で数カウント以下に押さえられるため、微弱なピークの検出が可能になり、検出感度が上がる。

【0015】

また、本発明では、化学分離などの人為的操縦を必要としないため、計算機によるオンライン化が可能である。つまり予め検出器のエネルギーと検出効率の校正を行っておけば、試料を測定しながら2次元マトリクスを生成し、その位置から核種の種類を特定し、同時に計算機に内蔵した核種毎の核データを参照して、マトリクス上のピークの強度から核種の定量を行い、実時間で結果を表示することが可能になる。当然ながら、半減期の長い核種の定量も高速化される。

【0016】

同様にして、本発明においては、中性子放射化法により放射化された試料中の核種の定性及び定量分析も可能になる。

【0017】

【発明の実施の形態】

(1) 中性子放射化法により放射化された試料中の核種の定性及び定量分析

複数のゲルマニウム半導体検出器からなる多重ガンマ線検出器を用いて放射化させた試料から発せられる複数のガンマ線を測定し、同時に観測された2本のガンマ線の組み合わせをコンピューターに記録し、これを解析する事により2次元スペクトルを作った。ここから任意のエネルギーを有するガンマ線と同時に観測されたガンマ線のスペクトルを作ると他の核種からのガンマ線にほとんど妨害されないきれいなスペクトルを得る事が出来る。これにより化学分離などの操作を行わなくても共存する核種からのガンマ線に妨害される事無く微量成分からのガンマ線を測定する事ができる。

【0018】

本発明の検出方法においては、図2に示されるように、原子炉からの熱中性子照射による放射化試料1から同時に発生するガンマ線を多重ガンマ線検出装置4

で同時に計数測定し、垂直軸をカウント（強さ）、縦軸及び横軸をガンマ線エネルギーとした2次元マトリックスを作成する。この方法では、試料中の放射性核種から同時に発生する2本のガンマ線 γ_1 、 γ_2 を多重ガンマ線検出装置で同時測定して、1次元スペクトルの代りに2次元マトリックスを作成する。そのために、多核種を含む試料においても化学分離等の処理なしに、1000倍のガンマ線分解能が達成され、核種の完全分離測定が可能となった。図2にでは、縦軸及び横軸はそれぞれガンマ線エネルギーを表すので、その縦軸に γ_1 の値が入り、その横軸に γ_2 の値が入ることによって定まった位置で核種の種類が特定でき、また、その位置に示されるピークの高さを垂直軸（カウント）により測定してその核種の存在量が検出される。

【0019】

又、図3に示されるように、放射化された ^{152}Eu からは841.6 keV及び121.8 keVの2本のガンマ線が同時に発生する。この2本のガンマ線を多重ガンマ線検出装置で同時に計数測定を行って2次元マトリックスを作成した。

【0020】

図3は、図2のように、縦軸及び横軸がそれぞれガンマ線エネルギーを表したもので、その中で特に縦軸を100から140 keV、横軸を820から860 keVの範囲に拡大している。

【0021】

図3の下方の拡大図からは、 ^{152}Eu から発生する2本のガンマ線121.8 keVと841.6 keVが同時に記録され、この位置によって核種の種類が特定できた。このようにして、49元素の最高ppb (10^{-9}) オーダーの同時定量が可能になった。

【0022】

本発明においては、多重ガンマ線検出装置は高い検出効率を有するため試料はミリグラムオーダーで足りる。また、非破壊検査のため放射化試料をそのまま測定できるため非常に簡便であり、広範囲の試料にも適応できる。例えば、環境試料や生体試料における微量な金属元素の定量や地球科学あるいは隕石の分析など

宇宙科学の分野での利用が期待できる。

【0023】

更にまた、 ^{129}I （半減期1570万年）や ^{244}Pu （8080万年）を用いた年代測定が提案されているが、これらの核種を本方法で分析することにより、年代測定への応用も期待できる。さらに近年、生体内での微量元素濃度と生体機能との関連が明らかになりつつあるが、本方法では広範囲の元素を同時に測定できるため、今まで見逃されてきた微量元素の量を調べて、その効果を新たに研究することが可能になる。

【0024】

(2) 放射性試料中の核種の定性及び定量分析

複数のガンマ線検出器からなる多重ガンマ線検出装置を用いて放射性試料から発せられる複数の同時発生ガンマ線を測定し、そのガンマ線対のエネルギー情報を事象毎にコンピューターに記録し、これを解析して2次元マトリクスを作った。これをマトリクス上にて、あるいは一方の軸に狭いゲートを設定して、1次元スペクトルを切り取った上で、実効的に2次元ピークの強度を測定する。ガンマ線のエネルギーと強度について事前に校正を行っておくことにより、2次元ピークのチャンネルとピーク面積は、エネルギーと強度に変換される。これらを基に、核種の定量が可能になる。

【0025】

以上の操作は事前に標準線源を測定して検出器の校正を行っておくことにより、オンラインで解析することが可能になる。そのために、予めエネルギーとその強度の判っている標準線源を測定して、検出器毎にエネルギーと検出効率の校正データを作成する。試料を測定しながら検出器のエネルギーを校正して2次元マトリクスを生成する。同時に計算機に内蔵した核種毎の核データを参照して、マトリクス上のピークの強度から検出効率の校正データを基に核種の定量を行い、実時間で結果を表示することが可能になる。当然ながら、半減期の長い長寿命核種の定量も、短寿命核種がなくなるのを待つ必要はなく、分析が高速化される。

【0026】

以上の発明で使用する多重ガンマ線検出装置は、最低2台以上のガンマ線検出

器から構成する。2台の検出器からの信号を速い同時計数回路にて、同時計数事象のみを選別する。その時に、2つの検出器からのエネルギー情報を計算機に取り込む。この情報を基にして、2つのガンマ線の相関を2次元マトリクス上に事象の頻度分布を作る。必ずしも、2次元マトリクスでなくとも、それに代わるものであれば良い。また、多重ガンマ線検出装置の性能は、検出器の台数が多いほど、また個々の検出器の検出効率が高ければ高い程良い。さらにBGOサプレッサーなどと組み合わせると、バックグラウンドを押さえて感度が良くすることができる。

【0027】

【実施例】

(実施例1) 中性子放射化法と組み合わせた微量元素定量法

標準岩石試料を原子炉で中性子照射を行い放射化した試料からのガンマ線を多重ガンマ線検出装置で測定した。約100ミリグラムの試料を10分間原子炉で放射化して発せられるガンマ線を約4日間多重ガンマ線測定装置で測定した。

【0028】

即ち、通産省工業技術院地質調査所の発行している標準岩石試料JB-1及びJP-1を原研研究炉JRR-4で中性子照射を行い、原研東海研究所タンデム加速器施設の多重ガンマ線検出装置”GEMINI”で1-4日間測定を行った。

【0029】

ここでは、化学分離等の人為的な操作を行わず、また短寿命の核種の崩壊を待つ必要もなく、照射後即測定を開始し、短時間で、27核種の元素が同時に定量できた。測定された元素は、ガンマ線の強度からその含有量を計算すると、これまでに得られている文献値と誤差の範囲内で一致した。また、同じ手法で49元素の同時定量が可能であることを明らかにした。2次元マトリクスではバックグラウンドが大幅に低減するため、微弱なピークの検出が可能になり、存在比 10^{-9} (10億分の1)オーダーの核種の定量ができるようになった。

【0030】

本発明で使用された多重ガンマ線検出装置”GEMINI”とは、BGOコン

プロトントンサブレッサーとゲルマニウム検出器を組み合わせたアンチコンプトンガンマ線分析器が、低バックグラウンド・高分解能を達成できるので、これを多数組み合わせて球状に配置した装置である。様々な核反応により作られた原子核の高励起状態からのガンマ線を測定して、それらの内部構造を調べるのを主目的として平成10年7月に完成した。原研東海研タンデム加速器施設での重イオンビームを用いた核分光実験で多くの実績を納めている。

【0031】

本実施例において、新しい検出法で同時定量可能となった元素（49種類）は、Ag, As, Ba, Br, Ca, Cd, Ce, Cl, Co, Cs, Er, Eu, Fe, Ga, Gd, Ge, Hf, Hg, I, In, Ir, K, La, Lu, Mn, Mo, Na, Nd, Ne, Ni, Os, Pt, Ra, Rb, Re, Ru, Sb, Sc, Se, Sm, Sn, Ta, Tb, Th, Ti, U, W, Yb, Znであり、その検出限界は 10^{-2} – 10^{-3} （重量比）である。

【0032】

これに対し、従来の放射化分析法（一次元スペクトル）で可能な元素は次の23種である。

Al, Ar, Au, Cr, Cu, Dy, F, Ho, Kr, Mg, Nb, Pd, Pr, Rh, S, Sr, Te, Tl, Tm, V, Xe, Y, Zr
 その検出限界は 10^{-2} – 10^{-3} （重量比）である。

【0033】

（実施例2）アクチノイド元素の分析

マイナーアクチノイド核種の核変換基礎データを計ることは、原子力研究にとって重要な基礎研究である。このためにマイナーアクチノイドの定量が必要であるが、これまでには主にアルファ線の測定によるところが大きかった。しかしながら、近傍の核種は似たエネルギーのアルファ線を放出するので高分解能で検出する必要があるが、アルファ線は物質中のエネルギーロスが大きいので、試料の化学分離を行い、不純物を除いた上で、乾固して薄い線源にする必要があった。これには特殊な技能が必要であるばかりでなく、時として高い分離効率を得ることは難しかった。

【0034】

多重ガンマ線検出法においては、多重ガンマ線を発生するという条件はあるものの、これらの問題点は解決され、化学分離なしに高精度の分析が可能になった。事実GEMINIを用いた ^{237}Np 標準線源の測定において0.01ベクレルの強度まで、完全に他の核種と分離して測定することができた。

【0035】

【発明の効果】

本発明により、一般に地質学的試料の中性子照射では、 ^{24}Na 及び ^{56}Mn からの強いガンマ線が観測されるため微量成分からのガンマ線を測定する事は困難であるが、多重ガンマ線分析法により化学分離を行う事無く同時に27元素からのガンマ線を観測する事ができた。また測定された元素はガンマ線の強度からその含有量を計算すると誤差の範囲内で標準岩石試料の文献値と一致していた。

【0036】

このことから本発明が定性分析だけでなく定量分析にも適応できる事がわかる。検出された元素の中でEuは僅か4ppbの含有量であるが、これも化学分離をする事無く他の元素と一緒に測定する事ができた。さらに条件が整えば49元素にこの方法を適用する事ができる。

【0037】

又、本発明により、一般に多数の放射性核種が存在する場合には、その各々を完全に分離して定量する事は不可能であるが、多重ガンマ線検出法では従来よりも分解能が格段に改善され、いかに多くの核種を含む場合でも、化学分離等の副次的手段を用いることなく、完全分離・完全定量を可能にした。

【図面の簡単な説明】

【図1】 従来の放射化試料の検出方法を示す図である。

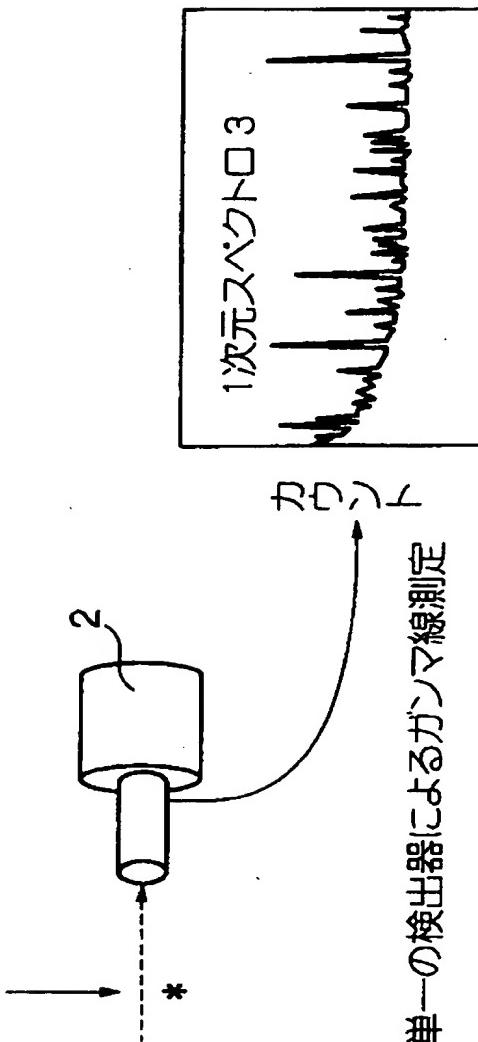
【図2】 本発明の放射化試料の検出方法を示す図である。

【図3】 本発明の検出法で作成した2次元マトリックスを示す図である。

【書類名】 図面

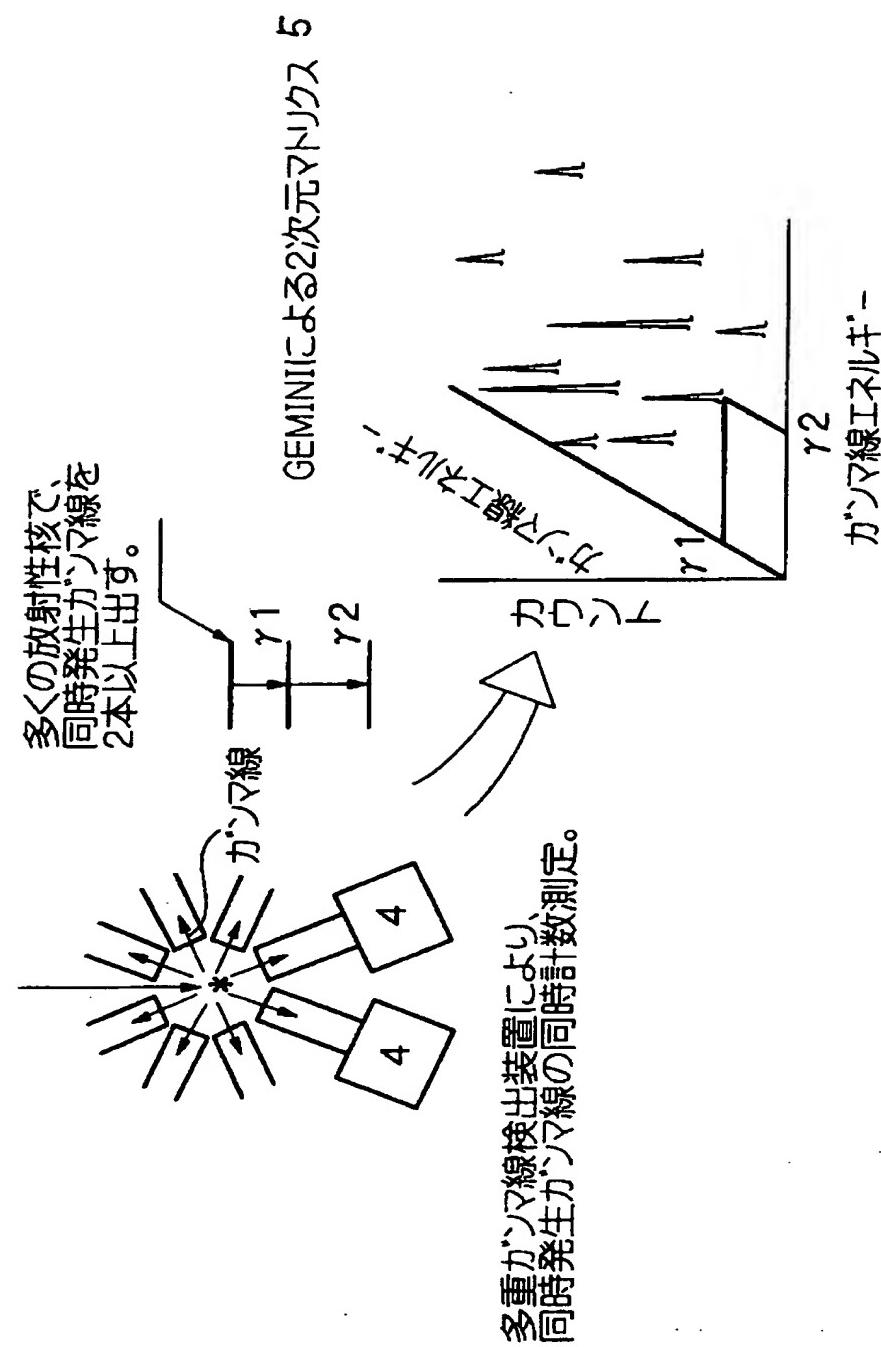
【図1】

原子炉からの熱中性子照射による放射化試料 1

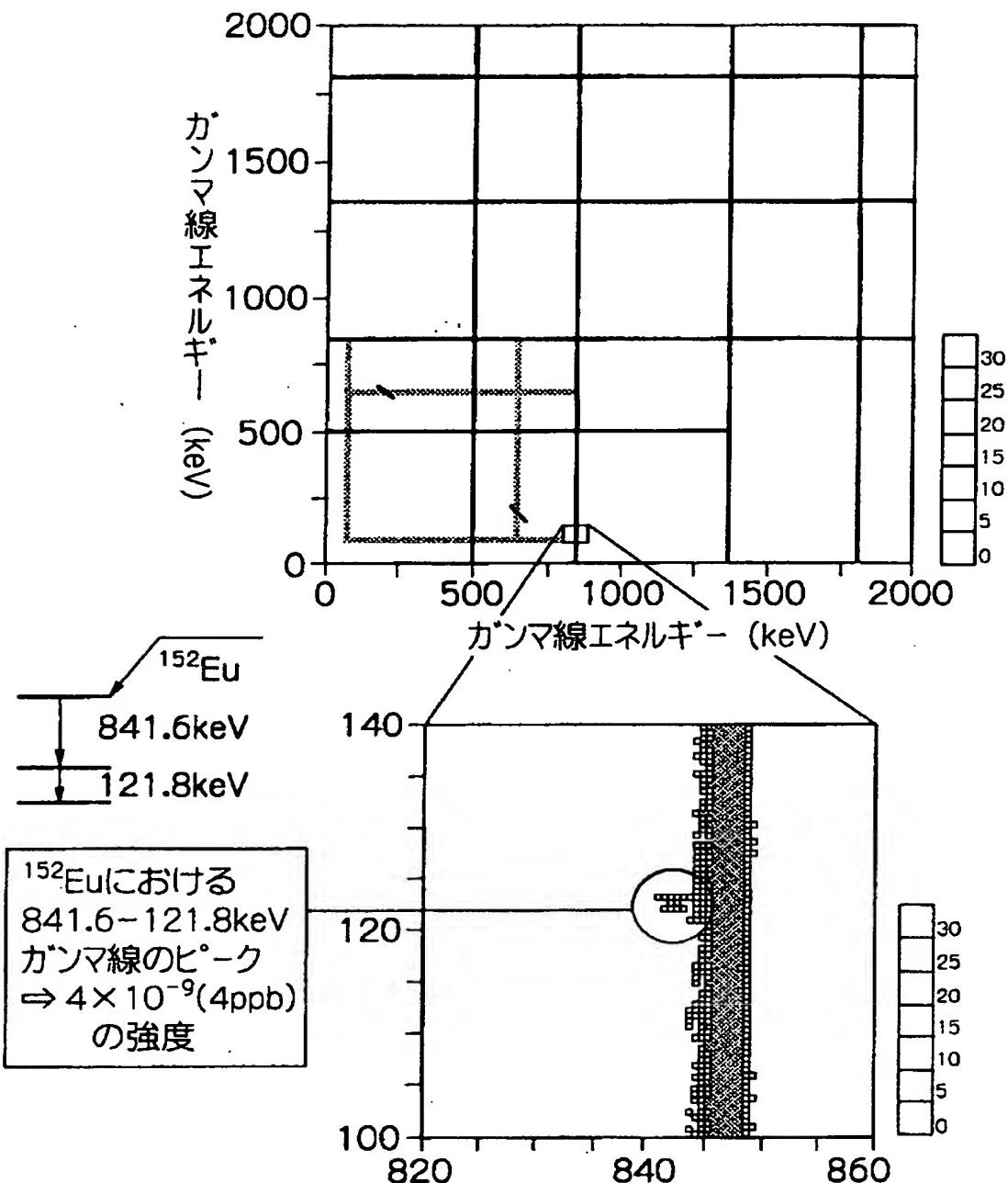


单一の検出器によるガンマ線測定

原子炉からの熱中性子照射による放射化試料 1



【図3】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 多重ガンマ線解析を微量元素分析に結び付けたものであって、多重ガンマ線解析を行う事により2次元にスペクトルを展開して2次元マトリックスを作成する事により従来のガンマ線測定よりも高分解能で放射化試料の分析を行う。

【解決手段】 放射化試料の放射性核種から同時発生する2本のガンマ線を多重ガンマ線検出装置で同時に測定して1次元スペクトルの代りに2次元マトリックスを作成することにより、試料中の多核種を化学分離等の処理することなく各核種を完全に分離して測定する。

【選択図】 図2

出願人履歴情報

識別番号 [000004097]

1. 変更年月日 1990年 8月16日

[変更理由] 新規登録

住 所 東京都千代田区内幸町2丁目2番2号

氏 名 日本原子力研究所